



PTO





202KU06  
BB**Process to prepare a catalyst for exhaust gas purification**

**Patent number:** EP0955080  
**Publication date:** 1999-11-10  
**Inventor:** SCHWIEGER WILHELM PROF DR (DE); KOEGEL MARKUS (DE); MOENNIG RONNY (DE); RAUSCHER MARCUS (DE); TISSLER ARNO DR (DE); TUREK THOMAS DR (DE); KISNADUTH KESORE (DE)  
**Applicant:** ALSI PENTA ZEOLITHE GMBH (DE)  
**Classification:**  
- **International:** B01D53/94; B01J29/06; B01J37/30  
- **European:** B01J29/06D; B01D53/94F2C  
**Application number:** EP19990105632 19990319  
**Priority number(s):** DE19981020515 19980508

**Also published as:**

 DE19820515 (A1)  
 EP0955080 (B1)

**Cited documents:**

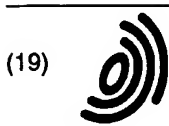
 US5171553  
 EP0625369  
 EP0756891  
 XP002114685

**Abstract of EP0955080**

A catalytic material is prepared by: (A) dry mixing (i) ammonium salts, NH<sub>3</sub>/NH<sub>4</sub>-zeolites or N-containing compounds, (ii) high silicate zeolite structures having a Si-Al ratio of more than 5, and (iii) copper, iron, cobalt, manganese, palladium, rhodium and/or platinum as active component, in a mill under normal pressure and temperature; (B) tempering at at least 300°C until complete ion exchange has occurred; and then (C) cooling to room temperature.

---

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide



Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



(11) **EP 0 955 080 B1**

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

(45) Veröffentlichungstag und Bekanntmachung des  
Hinweises auf die Patenterteilung:  
10.07.2002 Patentblatt 2002/28

(51) Int Cl.7: **B01D 53/94**, B01J 29/06,  
B01J 37/30

(21) Anmeldenummer: 99105632.6

(22) Anmeldetag: 19.03.1999

### (54) Verfahren zur Herstellung eines Katalysators für die Reinigung von Abgasen

Process to prepare a catalyst for exhaust gas purification

Procédé pour la préparation d'un catalyseur de purification des gaz d'échappement

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
DE FR GB IT SE

(30) Priorität: 08.05.1998 DE 19820515

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
10.11.1999 Patentblatt 1999/45

(73) Patentinhaber: **ALSI-PENTA Zeolithe GmbH**  
92421 Schwandorf (DE)

(72) Erfinder:  
• Tissler, Arno Dr.  
93105 Tegernheim (DE)  
• Turek, Thomas Dr.  
76133 Karlsruhe (DE)  
• Kögel, Markus  
67354 Römerberg (DE)  
• Schwieger, Wilhelm Prof. Dr.  
06110 Halle (DE)  
• Rauscher, Marcus  
74592 Kirchberg/Jagst (DE)

• Mönnig, Ronny  
06120 Halle (DE)  
• Klsnaduth, Kesore  
06110 Halle (DE)

(74) Vertreter: **Müller-Wolff, Thomas, Dipl.-Ing. et al**  
**HARWARDT NEUMANN**  
Patent- und Rechtsanwälte,  
Brandstrasse 10  
53721 Siegburg (DE)

(56) Entgegenhaltungen:  
EP-A- 0 625 369 EP-A- 0 756 891  
US-A- 5 171 553

• **VARGA ET AL.:** "ZSM-5 zeolites modified by  
solid-state ion-exchange for NO decomposition"  
STUDIES IN SURFACE SCIENCE AND  
CATALYSIS, Bd. 94, - 1995 Seiten 665-672,  
XP002114685 Amsterdam

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist. (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

EP 0 955 080 B1

## Beschreibung

**[0001]** Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines Katalysatormaterials für die Reinigung von  $N_2$ - und  $NO_x$ -haltigen Abgasen durch Einbringung einer metallischen Komponente in ein syntetisches Zeolithmaterial.

**[0002]** Es ist bekannt, zur Entfernung von Stickstoffoxiden aus Sauerstoff und Wasser enthaltenden Abgasen zeolithische Katalysatoren zu verwenden, die mindestens eine metallische katalytisch aktive Komponente enthalten. Bei diesen katalytisch aktiven Komponenten handelt es sich um Übergangs- oder Edelmetalle, ausgewählt unter Kupfer, Kobalt, Rhodium, Palladium, Iridium, Ruthenium, die durch Ionenaustausch in wässriger Lösung in das Zeolithmaterial eingebracht werden (siehe US 5171553 A).

**[0003]** Als Träger für die aktiven Komponenten wird ein siliciumreicher Zeolith mit einem Si/Al-Verhältnis von über 5, vorzugsweise 10 - 50 verwendet. Das Einbringen von anderen aktiven Komponenten in den Zeolithen z.B. von  $Fe^{2+}$  kann in wässrigen Metallsalzlösungen nicht mit für die Katalyse ausreichendem Ergebnis erfolgen.

**[0004]** Zu spektroskopischen Untersuchungen wird die Einbringung von Eisen in den Zeolithen durch Festkörperionenaustausch in

Studies in Surface Science and Catalysis 69, Seite 43 bis 64 (1991) für Zeolith Y und

Studies in Surface Science and Catalysis 94, Seite 665 bis 672 für Zeolithe ZSM-5 beschrieben. Diese Methode des Festkörperionenaustausches stellt eine deutliche Vereinfachung für das Einbringen von Eisen in Zeolithe der ZSM-5-Struktur da, weil sie unter Normaldruck und -temperatur erfolgt.

**[0005]** Bei der Methode des Festkörperionenaustausches werden zur Herstellung der Fe-Zeolithe auf mechanischem Wege Mischungen aus der  $NH_4$ - und/oder H-Form des Zeolithen und einem Eisensalz durch intensives mechanisches Mischen in einer Kugelmühle bei Raumtemperatur hergestellt. Danach wird diese Mischung in einem Kammerofen an Luft kalzinieren. Nach dem Kalzinieren wird die Fe-ZSM-5-Zeolithe in destilliertem Wasser intensiv gewaschen und nach Abfiltrieren des Zeolithen getrocknet.

**[0006]** Nach dem Einbringen der Edelmetalle durch Imprägnierung, wässrigen Ionenaustausch oder durch Vermahlung mit festen Salzen kann das Katalysatormaterial entweder in Pelletform, als Extrudat oder als extrudierten Wabenkörper eingesetzt werden. Dabei kommt es darauf an, daß der Katalysator eine hohe Aktivität bei niedrigen Temperaturen und eine hohe Unempfindlichkeit gegenüber  $SO_2$  und Wasserdampf aufweist.

**[0007]** In der Zeitschrift Journal of Catalysis 167, Seiten 256 bis 265 (1997) ist in Figur 1 die Konversion als Funktion der Temperatur bei 1 mbar  $N_2O$  für Co-, Cu- und Fe-ZSM-5 dargestellt. Man erkennt, daß die Konversion bei Temperaturen unter 650 K keinen nennenswerten Umfang aufweist. Dieses ist insbesondere für die simultane Reduktion von Distickstoffmonoxid und Stickstoffmonoxid in Abgasen aus industriellen Prozessen und bei Wirbelschichtfeuerungen von Nachteil, so daß ein Bedarf für ein bei niedrigen Temperaturen einsetzbares Katalysatormaterial bestand.

**[0008]** Für den Einsatz des Katalysatormaterials ist ferner die Langzeitstabilität wichtig, insbesondere in einer Atmosphäre von Wasserdampf und Schwefeldioxid. Es ist bekannt, daß das Katalysatormaterial unter hydrothermalen Bedingungen stabil ist, wenn es unter anaeroben Bedingungen hergestellt wurde. Dieses liegt daran, daß die  $Fe^{2+}$ -Kationen oxidiert werden in einem wässrigen Medium und dabei Eisenhydroxide ausgefällt werden. Die Herstellung in anaerober Atmosphäre ist jedoch aufwendig und wird außerdem nicht immer zu gleichbleibenden Ergebnissen hinsichtlich der Katalysatoraktivität.

**[0009]** Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, ein Verfahren zur Herstellung eines Katalysatormaterials für die Reduktion von  $N_2O$  und  $NO_x$  aus Abgasen anzugeben, das unter normalen Bedingungen in einem großtechnischen Maßstab durchgeführt werden kann. Das erzeugte Katalysatormaterial soll eine hohe katalytische Aktivität auch bei niedrigen Reaktionstemperaturen und auch in Gegenwart einer Wasserdampfatmosphäre und  $SO_2$  aufweisen.

**[0010]** Die Aufgabe wird erfindungsgemäß durch die in den Patentansprüchen angegebenen Merkmale gelöst. Es hat sich gezeigt, daß die Anwesenheit von Ammonium,  $NH_3/NH_4$ -Zeolithen und N-haltigen Verbindungen bei der Festkörperreaktion im Zeolithmaterial ein hoch wirksames Katalysatormaterial liefert, das für die Entfernung von Distickstoffmonoxid bei der Herstellung von Vor- und Zwischenprodukten für synthetische Polymerfasern und bei der Produktion von Salpetersäure einsetzbar ist. Die Katalysatorpräparation kann in einem Reaktor erfolgen, da hier die Bedingungen exakt kontrollierbar sind, wobei die Komponenten in einer Mühle unter Normaldruck und unter Normaltemperatur vermischt und bei einer Temperatur von mindestens 300 °C getempert werden, bis der Ionenaustausch vollständig erfolgt ist und anschließend eine Abkühlung auf Raumtemperatur vorgenommen wird. Vorzugsweise wird als Mühle zur Vermischung der Komponenten eine Kugelmühle verwendet. Als geeignetes Zeolithmaterial haben sich sowohl Zeolithe vom Typ MFI in der H- oder Ammoniumform als auch Zeolithe vom Mordenith-Typ in der H- oder Ammoniumform sowie Zeolith  $\beta$  in der H- oder Ammoniumform erwiesen.

**[0011]** Die Mischung wird während der Temperung, vorzugsweise einer stickstoffhaltigen, ammoniak- oder aminhaltigen Atmosphäre, ausgesetzt, wobei die Temperung mit einer Aufheizrate größer 10 K pro Minute erfolgt.

**[0012]** Im folgenden wird die Erfindung anhand mehrerer Ausführungsbeispiele näher erläutert. Es zeigen:

Erfindungsbeispiele 1 - 8	Temperung in Anwesenheit einer stickstoffhaltigen Komponente 2;
Vergleichsbeispiele 1, 2	Temperung ohne Komponente 2
Tabelle	über Katalysatoraktivitäten bezüglich der $N_2O$ -Spaltungsaktivität.

## Beispiele

### Herstellung der Katalysatoren

#### Beispiel 1

[0013] 0,9 g  $FeSO_4 \times 7 H_2O$  (Merck) und 5 g  $NH_4$ -MFI (SM27, ALSI-PENTA Zeolithe GmbH, Schwandorf) wurden in einer Kugelmühle für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in einem Kammerofen an Luft in 3 h von Raumtemperatur auf 550 °C aufgeheizt und dort 6 h gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

#### Beispiel 2

[0014] 0,9 g  $FeSO_4 \times 7 H_2O$  (Merck), 1,5 g  $(NH_4)_2SO_4$  (Merck) und 5 g H-MFI (SH27, ALSI-PENTA Zeolithe GmbH, Schwandorf) wurden in einer Kugelmühle für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in einem Kammerofen an Luft in 3 h von Raumtemperatur auf 550 °C aufgeheizt und dort 6 h gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

#### Beispiel 3

[0015] 0,9 g  $FeSO_4 \times 7 H_2O$  (Merck), 1,5 g  $(NH_4)_2SO_4$  (Merck) und 5 g  $NH_4$ -MFI (SM27, ALSI-PENTA Zeolithe GmbH, Schwandorf) wurden in einer Kugelmühle für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in einem Kammerofen an Luft in 3 h von Raumtemperatur auf 550 °C aufgeheizt und dort 6 h gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

#### Beispiel 4

[0016] 0,9 g  $FeSO_4 \times 7 H_2O$  (Merck) und 5 g  $NH_4$ -MFI (SM27, ALSI-PENTA Zeolithe GmbH, Schwandorf) wurden in einer Kugelmühle für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in dem Rohrreaktor, der auch für die Durchführung der Messungen zur Entfernung von Distickstoffmonoxid benutzt wurde, im Stickstoffstrom in 3 h von Raumtemperatur auf 550 °C aufgeheizt und dort 6 h gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

#### Beispiel 5

[0017] 0,9 g  $FeSO_4 \times 7 H_2O$  und 5 g  $NH_4$ -MFI (SM27, ALSI-PENTA Zeolithe GmbH, Schwandorf) wurden in einer Kugelmühle für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in einem bei 370 °C vorgeheizten Kammerofen gegeben und dort 1 h an Luft gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

#### Beispiel 6

[0018] 0,9 g  $FeSO_4 \times 7 H_2O$  (Merck) und 5 g  $NH_4$ -MFI (SM27, ALSI-PENTA Zeolithe GmbH, Schwandorf) wurden in einer Kugelmühle für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in dem Rohrreaktor, der auch für die Durchführung der Messungen zur Entfernung von Distickstoffmonoxid benutzt wurde, im Stickstoffstrom in 10

Minuten von Raumtemperatur auf 370 °C aufgeheizt und dort 1 h gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

#### 5 Beispiel 7

[0019] 5 g Ammoniummordenit mit einem  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ -Verhältnis von 18 wurden in einer Kugelmühle mit 0,9 g  $\text{FeSO}_4 \times 7\text{H}_2\text{O}$  (Merck) für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in dem Rohrreaktor, der auch für die Durchführung der Messungen zur Entfernung von Distickstoffmonoxid benutzt wurde, im Stickstoffstrom in 10 Minuten von Raumtemperatur auf 370 °C aufgeheizt und dort 1 h gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

#### 15 Beispiel 8

[0020] 5 g Ammonium-Zeolith  $\beta$  mit einem  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ -Verhältnis von 40 wurden in einer Kugelmühle mit 0,9 g  $\text{FeSO}_4 \times 7\text{H}_2\text{O}$  (Merck) für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in dem Rohrreaktor, der auch für die Durchführung der Messungen zur Entfernung von Distickstoffmonoxid benutzt wurde, im Stickstoffstrom in 10 Minuten von Raumtemperatur auf 370 °C aufgeheizt und dort 1 h gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

#### Vergleichsbeispiel 1

[0021] 0,9 g  $\text{FeSO}_4 \times 7\text{H}_2\text{O}$  (Merck) und 5 g Na-MFI (SN27, ALSI-PENTA Zeolithe GmbH, Schwandorf) wurden in einer Kugelmühle für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in einem Kammerofen an Luft in 3 h von Raumtemperatur auf 550 °C aufgeheizt und dort 6 h gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

#### 30 Vergleichsbeispiel 2

[0022] 0,9 g  $\text{FeSO}_4 \times 7\text{H}_2\text{O}$  (Merck) und 5 g H-MFI (SH27, ALSI-PENTA Zeolithe GmbH, Schwandorf) wurden in einer Kugelmühle für 1 h bei Raumtemperatur an Luft gemischt. Die Mischung wurde in einem Kammerofen an Luft in 3 h von Raumtemperatur auf 550 °C aufgeheizt und dort 6 h gehalten. Nach Abkühlen wurde die Mischung intensiv mit Wasser gewaschen, getrocknet und zu Tabletten gepreßt. Nach Zerkleinern und Sieben wurde die gewünschte Katalysatorfraktion erhalten.

[0023] Durchführung der Versuche zur Entfernung von Distickstoffmonoxid

40 a) Als Versuchsanlage für die  $\text{N}_2\text{O}$ -Entfernung dient ein 300 mm langes Quarzrohr mit einem Innendurchmesser von 11 mm, das in Vorheizzone, die mit Quarzsplit gefüllt ist, und Reaktionszone unterteilt ist. Zur Messung der Temperatur in der Reaktionszone wird ein Thermoelement benutzt, das sich in einem Innenrohr mit 3 mm Außendurchmesser befindet. Getestet wurden jeweils 0,5 ml Katalysator (Split mit 0,315 bis 0,5 mm Durchmesser). Für die Zersetzung von  $\text{N}_2\text{O}$  wurde ein Gasgemisch bestehend aus 1000 ppm Distickstoffmonoxid in Stickstoff bei einer Raumgeschwindigkeit (GHSV) von 60000 NI Gas/l Katalysator h verwendet. Vor den Versuchen wurden die Katalysatoren für 1 h im Stickstoffstrom aktiviert. Der Distickstoffmonoxid-Umsatz wurde durch Messung der  $\text{N}_2\text{O}$ -Konzentration vor und nach dem Reaktor mit Hilfe eines Infrarot-Photometers bestimmt.

50 b) Alternativ wurde die Reduktion des Distickstoffmonoxids mit einem Kohlenwasserstoff getestet. Dazu wurde eine Gasgemischung bestehend aus 1000 ppm  $\text{N}_2\text{O}$ , 4 Vol.% Sauerstoff, 1000 ppm Propan und bis zu 8 Vol.% Wasserdampf (Rest Stickstoff) bei GHSV = 30000 NI Gas/l Katalysator h und ansonsten gleichen Versuchsbedingungen verwendet.

#### V Versuchsergebnisse

55

[0024]

a) Zersetzung von Distickstoffmonoxid

Katalysator	Temperatur (°C)	Umsatz (%)
1	500	86
1	400	6
2	500	85
2	400	6
3	500	87
3	400	6
4	500	97
4	400	17
5	500	98
5	400	20
6	500	98
6	400	18
7	500	72
7	400	5
8	500	63
8	400	3
V1	500	45
V1	400	2
V2	500	6
V2	400	0

## b) Reduktion von Distickstoffmonoxid

Katalysator	Temperatur (°C)	Wasserzusatz (Vol-%)	Umsatz (%)
1	500	0	99.5
1	400	0	99
1	400	8	98
V1	500	0	99
V1	400	0	95
V2	500	0	60
V2	400	0	2

[0025] Die Versuchsergebnisse belegen eindeutig die Überlegenheit derjenigen Katalysatoren, bei denen eine stickstoffhaltige Komponente während der Präparation benutzt wird.

## Patentansprüche

- Verfahren zur Herstellung eines Katalysatormaterials für die Reinigung von  $N_2O$ - und  $NO_x$ -haltigen Abgasen durch Einbringung einer metallischen Komponente in ein syntetisches Zeolithmaterial, dadurch gekennzeichnet, daß eine trockene Mischung aus folgenden Komponenten hergestellt wird
  - Komponente 1, bestehend aus Ammoniumsalzen oder N-haltigen Verbindungen,
  - Komponente 2, bestehend aus  $NH_3/NH_4$ -Zeolithen mit hochsilikatischen Zeolith-Strukturen und einem Si-Al-Verhältnis von mehr als 5,
  - Komponente 3 bestehend aus einer Eisen- Verbindung als aktiver Komponente,

wobei die Komponenten 1, 2, 3 in einer Mühle unter Normaldruck und Normaltemperatur vermischt und bei einer Temperatur von mindestens 300 °C getempert werden, bis der Ionenaustausch vollständig erfolgt ist und anschließend eine Abkühlung auf Raumtemperatur erfolgt.

- 5 2. Verfahren nach Anspruch 1,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
**daß** als Zeolithmaterial ein Zeolith vom Typ MFI in der Ammonium-Form verwendet wird.
- 10 3. Verfahren nach Anspruch 1,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
**daß** als Zeolithmaterial ein Zeolith vom Mordenit-Typ in der Ammonium-Form verwendet wird.
- 15 4. Verfahren nach Anspruch 1,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
**daß** als Zeolithmaterial ein Zeolith  $\beta$  in der Ammonium-Form verwendet wird.
- 20 5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
**daß** für die Vermischung der Komponenten 1, 2, 3 eine Kugelmühle verwendet wird.
- 25 6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
**daß** die Mischung während der Temperung einer stickstoffhaltigen Atmosphäre ausgesetzt wird.
- 30 7. Verfahren nach Anspruch 6,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
**daß** die Temperung in einer ammoniak- oder aminhaltigen Atmosphäre erfolgt.
8. Verfahren nach Anspruch 6,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
**daß** die Temperung mit einer Aufheizrate  $> 10$  K pro Minute erfolgt.

#### Claims

- 35 1. A process of producing a catalyst material for purifying  $N_2O$ - and  $NO_x$ -containing exhaust gases by introducing a metallic component into a synthetic zeolite material,  
**characterised in**  
40 **that** there is produced a dry mixture consisting of the following components:
  - component 1 consisting of ammonium salts or N-containing compounds,
  - component 2 consisting of  $NH_3/NH_4$  zeolites with highly siliceous zeolite structures and a Si/Al ratio in excess of 5,
  - component 3 consisting of an iron compound constituting the active component,
 45 wherein components 1, 2, 3 are mixed in a mill under standard pressure and a standard temperature and tempered at a temperature of at least 300 °C until the ion exchange has been completed, and wherein subsequently the components are cooled to room temperature.
- 50 2. A process according to claim 1,  
**characterised in**  
**that** the zeolite material used is a zeolite of type MFI in the form of ammonium.
- 55 3. A process according to claim 1,  
**characterised in**  
**that** the zeolite material used is a zeolite of the mordenite type in the form of ammonium.
4. A process according to claim 1,

characterised in  
that the zeolite material used is a zeolite  $\beta$  in the form of ammonium.

- 5 5. A process according to any one of the preceding claims,  
characterised in  
that components 1, 2, 3 are mixed by a ball mill.
- 10 6. A process according to any one of the preceding claims,  
characterised in  
that, while being tempered, the mixture is subjected to a nitrogen-containing atmosphere.
- 15 7. A process according to claim 6,  
characterised in  
that tempering takes place in an ammonia- or amine-containing atmosphere.
8. A process according to claim 6,  
characterised in  
that tempering takes place at a heating rate  $> 10$  K per minute.

#### Revendications

- 25 1. Procédé pour la préparation d'une matière de catalyseur destinée à la purification de gaz d'échappement contenant  $N_2O$  et  $NO_x$  par introduction d'un constituant métallique dans une matière de zéolite synthétique,  
caractérisé  
en ce que l'on prépare un mélange sec à partir des constituants suivants :
  - constituant 1, constitué de sels d'ammonium ou de composés contenant N,
  - constituant 2, constitué de zéolites  $NH_3/NH_4$  avec des structures de zéolite à teneur élevée en silicate et un
  - 30 rapport Si-Al supérieur à 5,
  - constituant 3, constitué d'un composé du fer comme constituant actif,

les constituants 1, 2, 3 étant mélangés dans un broyeur à pression atmosphérique et à température ambiante et étant maintenus à une température d'au moins  $300^\circ C$  jusqu'à ce que l'échange ionique soit complètement réalisé

- 35 et un refroidissement jusqu'à température ambiante étant ensuite réalisé.
- 2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on utilise comme matière de zéolite une zéolite de type MFI dans la forme d'ammonium
- 40 3. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on utilise comme matière de zéolite une zéolite de type mordénite dans la forme ammonium.
- 4. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on utilise comme matière de zéolite une zéolite  $\beta$  dans la forme ammonium.
- 45 5. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'on utilise pour le mélange des constituants 1, 2, 3 un broyeur à galets.
- 50 6. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'on expose le mélange pendant le maintien à température à une atmosphère contenant de l'azote.
- 7. Procédé selon la revendication 6, caractérisé en ce que l'on réalise le maintien à température dans une atmosphère contenant de l'ammoniac ou une amine.
- 55 8. Procédé selon la revendication 6, caractérisé en ce que le maintien à température est réalisé à une vitesse d'échauffement  $> 10$  K par minute.